## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number:

10-239874

(43)Date of publication of application: 11.09.1998

(51)Int.CI.

G03G 5/06

(21)Application number: 09-042444

(71)Applicant: MITA IND CO LTD

(22)Date of filing:

26.02.1997 (72)Inventor: KADOI MIKIO

KAWAGUCHI HIROBUMI

KAWAHARA ARIHIKO HAMAZAKI KAZUYA INAGAKI YOSHIO YASHIMA AYAKO

#### (54) ELECTROPHOTOGRAPHIC PHOTORECEPTOR

#### (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a single-layer type elecrophotographic photoreceptor high in sensitivity by forming the single photosensitive layer containing a positive hole transfer agent of a specified stilbene derivative and an electron transfer agent on a conductive substrate. SOLUTION: This electrophotographic photoreceptor is provided on the conductive substrate with the single photosensitive layer containing the electron transfer agent and the positive hole transfer agent of the stilbene derivative represented by the formula in which each of R1, R2, R5, and R6 is, independently, an alkyl, alkoxy, aryl, aralkyl, or a halogen atom; each of (m), (n), (p), and (q) is, independently, 0, 1, 2, or 3, and when R1 and R2 are the same group, (m) and (n) are different from each other; and each of R3 and R4 is, independently, an H atom or an alkyl group.

#### **LEGAL STATUS**

[Date of request for examination]

15.05.2000

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

3272257

[Date of registration]

25.01.2002

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

000E 07 01 0 € 4.11.00

THIS PAGE BLANK (USPTO)

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]
[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁(JP)

## (12) 公開特許公報(A)

(11)特許出顧公開番号

特開平10-239874

(43)公開日 平成10年(1998)9月11日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

G03G 5/06

識別記号 313 FΙ

G03G 5/06

313

#### 審査請求 未請求 請求項の数2 OL (全 38 頁)

(21)出願番号 (22)出願日

特願平9-42444

平成9年(1997)2月26日

(71)出願人 000006150

三田工業株式会社

大阪府大阪市中央区玉造1丁目2番28号

(72) 発明者 角井 幹男

大阪府大阪市中央区玉造1丁目2番28号

三田工業株式会社内

(72)発明者 川口 博文

大阪府大阪市中央区玉造1丁目2番28号

三田工業株式会社内

(72)発明者 川原 在彦

大阪府大阪市中央区玉造1丁目2番28号

三田工業株式会社内

(74)代理人 弁理士 亀井 弘勝 (外1名)

最終頁に続く

#### (54) 【発明の名称】 電子写真感光体

(57)【要約】

(修正有)

【課題】 高感度の単層型電子写真感光体を提供する。 【解決手段】 導電性基体上に単一の感光層を設けた電子写真感光体であって、前記感光層が、下記一般式(1) で表されるスチルベン誘導体と電子輸送剤とを含有する。

(式中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^5$  および $R^6$  は同一または異なって、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アラルキル基またはハロゲン原子を示す。m、n、p およびq は同一または異なって $0\sim3$  の整数を示す。但し、 $R^1$  および $R^2$  が同一の基であるとき、mおよびnは異なる整数を示す。また、 $R^5$  および $R^6$  が同一の基であるとき、p およびq は異なる整数を示す。 $R^3$  および $R^4$  は同一または異なって、水素原子またはアルキル基を示

す。) で表されるスチルベン誘導体であることを特徴と する電子写真感光体。

#### 【特許請求の範囲】

【請求項1】導電性基体上に、正孔輸送剤と電子輸送剤とを含有する単一の感光層を設けた電子写真感光体であ

って、前記正孔輸送剤が、一般式(1):

2

$$(R^1)_m$$
 $R^3$ 
 $CH=CH$ 
 $(R^5)_p$ 
 $(R^6)_q$ 
 $(R^6)_q$ 

(式中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^5$  および $R^6$  は同一または異なって、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アラルキル基またはハロゲン原子を示す。m、n、pおよびqは同一または異なって $0\sim3$ の整数を示す。但し、 $R^1$ および $R^2$  が同一の基であるとき、mおよびnは異なる整数を示す。また、 $R^5$  および $R^6$  が同一の基であるとき、pおよびqは異なる整数を示す。 $R^3$  および $R^4$  は同一または異なって、水素原子またはアルキル基を示す。) で表されるスチルベン誘導体であることを特徴とする電子写真感光体。

【請求項2】前記電子輸送剤が、一般式(2):

#### 【化2】

〔式中、 $R^7$ 、 $R^8$ 、 $R^9$  および $R^{10}$  は同一または異な 30 って水素原子、アルキル基、アルコキシ基、アリール 基、アラルキル基、シクロアルキル基またはアミノ基を示す。ただし $R^7$ 、 $R^8$ 、 $R^9$  、 $R^{10}$  のうち少なくとも 2 つは、水素原子でない同一の基である。〕で表される ジフェノキノン誘導体、一般式(3) :

#### 【化3】

$$R^{11}$$
 (3)

[式中、R"は置換基を有してもよいアルキル基または 置換基を有してもよいアリール基を示し、R<sup>12</sup> は置換基 を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいアリ ール基または基:

#### - O - R 12a

を示す。上記基中のR<sup>12a</sup> は、置換基を有してもよいアルキル基または置換基を有してもよいアリール基を示す。〕で表されるナフトキノン誘導体、一般式(4):

#### [化4]

$$R^{14}$$
 $R^{15}$ 
 $R^{16}$ 
 $R^{17}$ 
 $R^{18}$ 
 $R^{19}$ 
 $R^{19}$ 
 $R^{19}$ 
 $R^{19}$ 
 $R^{19}$ 
 $R^{19}$ 

〔式中、 $R^{13}$ 、 $R^{14}$ 、 $R^{15}$ 、 $R^{16}$  、 $R^{17}$  、 $R^{18}$  および $R^{19}$  は同一または異なってアルキル基、アリール基、アラルキル基、アルコキシ基、ハロゲン原子またはハロゲン化アルキル基を示す。  $\chi$  および  $\phi$  は同一または異なって $0\sim4$  の整数を示す。〕で表されるジアザナフト [2,3-b] フルオレン誘導体および一般式(5):

#### 【化5】

$$(R^{20})_{\tau}$$
  $(R^{21})_{\psi}$   $(5)$ 

[式中、 $R^{20}$  および $R^{21}$  は同一または異なってアルキル基、アリール基、アルコキシ基、ハロゲン原子またはハロゲン化アルキル基を示す。  $\tau$  および  $\psi$  は同一または異なって  $0\sim4$  の整数を示す。〕で表されるジアザナフト[2,3-b]フルオレン誘導体からなる群より選ばれる少なくとも 1 種である請求項 1 記載の電子写真感光体。

#### 【発明の詳細な説明】

#### [0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、静電式複写機、ファクシミリ、レーザービームプリンタ等の画像形成装置 に用いられる電子写真感光体に関する。

#### [0002]

【従来の技術】上記画像形成装置においては、当該装置 50 に用いられる光源の波長領域に感度を有する種々の有機

感光体が使用されている。この有機感光体は、従来の無 機感光体に比べて製造が容易であり、電荷輸送剤、電荷 発生剤、結着樹脂等の感光体材料の選択肢が多様で、機 能設計の自由度が高いという利点を有することから、近 年、広く用いられている。

【0003】有機感光体には、電荷輸送剤を電荷発生剤 とともに同一の感光層中に分散させた単層型感光体と、

電荷発生剤を含有する電荷発生層と電荷輸送剤を含有す る電荷輸送層とを積層した積層型感光体とがある。

#### [0004]

【発明が解決しようとする課題】特開平7-24438 9号公報には、一般式(6):

[0005]

【化6】

【0006】(式中、R<sup>A</sup>、R<sup>B</sup>、R<sup>C</sup> およびR<sup>D</sup> は水 素原子、ハロゲン原子、置換基を有してもよいアルキル 基、置換基を有してもよいアリール基またはアルコキシ 基を示し、RE、RFは水素原子、ハロゲン原子、アル 20 キル基、アルコキシ基またはアリール基を示す。) で表 されるスチルベン誘導体を正孔輸送剤として感光層中に 含有させた積層型の電子写真感光体が開示されている。

【0007】積層型感光体は、電荷発生層と電荷輸送層 との積層順序と、電荷輸送層に含有させる電荷輸送剤の 種類によって、正負いずれの帯電型にするかを選択する ことができる。しかし、電荷発生層の膜厚が電荷輸送層 に比べてごく薄いことから、導電性基体上に電荷輸送層 を形成し、その上に電荷発生層を形成した場合には、最 外層に保護層を設ける必要が生じて、その結果、感光体 30 の光学特性が低下してしまう。そこで、最外層に電荷輸 送層を形成した構成が多用されている。

【0008】上記公報に開示の電子写真感光体は、前述 のように、最外層に電荷輸送層を設けた構成において、 電荷輸送層に含有させる電荷輸送剤として上記スチルベ ン誘導体(6) を用いている。しかし、このスチルベン誘

導体(6) は正孔輸送剤であるため、感光体の帯電型が負 帯電型となり、帯電の際にオゾン発生量の多い負極性コ ロナ放電を用いる必要が生じる。その結果、帯電時に発 生するオゾンによって感光体の劣化が速くなったり、環 境に悪影響を及ぼすといった問題がある。

【0009】また、上記スチルベン誘導体(6) は電荷移 動度が十分に大きくないため、得られる積層型感光体の 光感度は実用レベルに達していないという問題もあっ た。そこで本発明の目的は、上記の問題を解決し、高感 度の電子写真感光体を提供することである。

#### [0010]

【課題を解決するための手段】本発明者らは、上記課題 を解決するために、電子写真感光体の構成として単層型 感光体を採用するとともに、かかる感光体に用いる電荷 輸送剤として好適な化合物を見出すべくさらに研究を重 ねた結果、導電性基体上に、正孔輸送剤と電子輸送剤と を含有する単一の感光層を設けた電子写真感光体であっ て、前記正孔輸送剤が、一般式(1):

[0011]

【化7】

$$(R^1)_m$$
 $R^3$ 
 $CH=CH$ 
 $(R^5)_p$ 
 $(R^6)_q$ 
 $(R^6)_q$ 

【0012】(式中、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>5</sup> およびR<sup>6</sup> は同 一または異なって、アルキル基、アルコキシ基、アリー ル基、アラルキル基またはハロゲン原子を示す。m、 n、pおよびqは同一または異なって0~3の整数を示 す。但し、R'およびR2 が同一の基であるとき、mお 50 子輸送剤とを含有するときは、上記課題を解決し、高感

よびnは異なる整数を示す。また、R5 およびR6 が同 一の基であるとき、pおよびqは異なる整数を示す。R 3 およびR4 は同一または異なって、水素原子またはア ルキル基を示す。)で表されるスチルベン誘導体と、電 度の電子写真感光体が得られるという新たな事実を見出 し、本発明を完成するに至った。

【0013】本発明の電子写真感光体は、前述のように、導電性基体上に単一の感光層を設けてなる単層型感光体である。単層型感光体は、単独の構成で正負いずれの帯電型にも適用可能で、層構成が簡単で生産性に優れており、層を形成する際の被膜欠陥を抑制できること、層間の界面が少なく、光学的特性に優れている等の利点を有する。

【0014】また、本発明の電子写真感光体において正 10 孔輸送剤として用いられているスチルベン誘導体は、一般式(1)に示すように分子末端のジフェニルアミノ基が非対称で、すなわちジフェニルアミノ基の2つのベンゼン環が互いに異なる置換基を有するか、または置換基の数が異なることから、高い電荷移動度を有している。さらに本発明の電子写真感光体においては、この正孔輸送剤を電子輸送剤とともに感光層中に含有させていることから、実用上十分な高い感度を示している。

【0015】本発明の電子写真感光体における電子輸送 剤として、一般式(2):

[0016]

【化8】

【0017】〔式中、R<sup>7</sup>、R<sup>8</sup>、R<sup>9</sup> およびR<sup>10</sup> は同一または異なって水素原子、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アラルキル基、シクロアルキル基また 30はアミノ基を示す。ただしR<sup>7</sup>、R<sup>8</sup>、R<sup>9</sup>、R<sup>10</sup>のうち少なくとも2つは、水素原子でない同一の基である。〕で表されるジフェノキノン誘導体、一般式(3):

【0018】 【化9】

$$C = R^{11}$$
 (3)

【0019】〔式中、R<sup>11</sup> は置換基を有してもよいアルキル基または置換基を有してもよいアリール基を示し、R<sup>12</sup> は置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいアリール基または基:

 $-O-R^{12a}$ 

を示す。上記基中のR<sup>12</sup> は、置換基を有してもよいアルキル基または置換基を有してもよいアリール基を示す。〕で表されるナフトキノン誘導体、一般式(4) : 【0020】

【化10】

$$R^{14}$$
 $R^{15}$ 
 $R^{16}$ 
 $R^{17}$ 
 $R^{17}$ 
 $R^{18}$ 
 $R^{18}$ 
 $R^{18}$ 
 $R^{19}$ 
 $R^{19}$ 
 $R^{19}$ 
 $R^{19}$ 
 $R^{19}$ 
 $R^{19}$ 
 $R^{19}$ 

【0021】〔式中、 $R^{13}$ 、 $R^{14}$ 、 $R^{15}$ 、 $R^{16}$ 、 $R^{17}$ 、 $R^{18}$  および $R^{19}$  は同一または異なってアルキル基、アリール基、アラルキル基、アルコキシ基、ハロゲン原子またはハロゲン化アルキル基を示す。  $\chi$  および $\phi$  は同一または異なって $0\sim4$ の整数を示す。〕で表されるジアザナフト [2,3-b] フルオレン誘導体および一般式(5):

[0022]

20

 $(R^{20})_{\overline{\tau}} \qquad (R^{21})_{\psi}$ 

【0023】〔式中、R<sup>20</sup> およびR<sup>21</sup> は同一または異なってアルキル基、アリール基、アルコキシ基、ハロゲン原子またはハロゲン化アルキル基を示す。 r および v は同一または異なって0~4の整数を示す。〕で表されるジアザナフト [2,3-b] フルオレン誘導体からなる群より選ばれる少なくとも1種を用いたときは、正孔輸送剤であるスチルベン誘導体(1) との間に電荷移動錯体を形成するおそれがない。従って、上記例示の電子輸送剤(2)~(5) は、スチルベン誘導体(1) と組み合わせて用いるのに好適である。

[0024]

【発明の実施の形態】まず、本発明の電子写真感光体に用いられるスチルベン誘導体(1) について詳細に説明する。上記一般式(1) 中、R¹、R²、R⁵ およびR⁶ に相当するアルキル基としては、例えばメチル、エチル、ロープロピル、イソプロピル、ローブチル、イソブチル、sーブチル、ローブチル、ローベンチル、ローペンチル、ローペシー・カル等の炭素数が1~6の基があげられる。アルコキシ、イソプロポキシ、レーブトキシ、ローペンチルオキシ、ローペキシルオキシ等の炭素数が1~6の基があげられる。アリール基としては、例えばフェニル、ナフチル、アントリル、フェナントリル、フルオレニル、ビフェニリル、ローテルフェニル等の基があげられる。アラルキル基としては、例えばベンジル、フェネチル、ベン

ズヒドリル、トリチル等の基があげられる。ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素などがあげられる。

【0025】上記置換基 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^5$  および $R^6$  の数を示す符号m、n、p およびq が2 以上のとき、各置換基は互いに異なっていてもよい。すなわち、例えば基 $R^1$  の数を示す符号m が2 のとき、同一のベンゼン環にメチル基とエチル基、メチル基とエトキシ基のように異なる基が置換してもよい。また、一般式(1) 中、(1) 中、(1) の

よび $R^4$  に相当する炭素数 $1\sim3$ のアルキル基は、前記例示の炭素数 $1\sim6$ のアルキル基からブチル、ペンチルおよびヘキシルを除いたものである。

【0026】本発明のスチルベン誘導体(1) には下記の一般式(11)~(13)が含まれるが、とりわけ一般式(11)および(12)で表されるスチルベン誘導体が好適に用いられる。

[0027]

【0028】(式中、R¹~R⁶ およびm~qは前記と同じである。)

上記一般式(11)および(12)で表されるスチルベン誘導体 の具体例として、基 $R^1 \sim R^6$  に相当する置換基を下記 の表 $1 \sim 4$ に示す。表 $1 \sim 4$ 中、化合物番号が「11 ー」で始まるものは、一般式(11)に含まれるスチルベン 誘導体であって、化合物番号が「12ー」で始まるもの は、一般式(12)に含まれるスチルベン誘導体である。

[0029]

【表1】

9

化合物 番号	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	R <sup>5</sup>	R <sup>6</sup>
11-1	4- Me	Н	Н	Н	4- Me	Н
12-1	4 - Me	Н	н	н	4- Me	Н
11-2	4- Me	Н	2- Me	2- Me	4- Me	Н
12-2	4 - Me	Н	2- Me	2- Me	4- Me	Н
11 - 3	4- E t	H	Н	Н	4- E t	Н
12-3	4- E t	Н	Н	Н	4- E t	Н
11-4	4- E t	Н	2- Me	2- Me	4- E t	Н
12-4	4- E t	Н	2- Me	2- Me	4- E t	Н
11-5	4- E t	4- Me	Н	Н	4- E t	4 - Me
12-5	4- E t	4- Me	Н	H	4- E t	4- Me
11-6	4- E t	4- Me	2- Me	2- Me	4- E t	4- Me
12-6	4- E t	4 - Me	2- Me	2- Me	4- E t	4- Me
11-7	4- E t	3- Me	Н	Н	4- E t	3- Me
12-7	4- E t	3 - Me	Н	н	4- E t	3 - Me
11-8	4- E t	3 - Me	2- Me	2- Me	4- E t	3 - Me
12 8	4- E t	3 - Me	2- Me	2- Me	4- E t	3- Me
11 - 9	4 - i P r	Н	Н	Н	4-iPr	Н
12-9	4 - i P r	H	Н	Н	4-iPr	Н
11-10	4-iPr	4- Me	H	Н	4-iPr	4- Me
12-10	4 - i P r	4- Me	H	Н	4 - i P r	4- Me
11-11	4 - i P r	4- Me	2- Me	2- Me	4-iPr	4- Me
12-11	4 - i P r	4 - Me	2- Me	2- Me	4-iPr	4- Me
11-12	4-iPr	3- Me	Н	Н	4-iPr	3- Me
12-12	4-iPr	3-Me	H	Н	4 - i P r	3- Me

[0030]

【表2】

化合物 番号	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	R <sup>5</sup>	R <sup>6</sup>
11-13	4 - i P r	3- Me	2- Me	2- Me	4-iPr	3- Me
12-13	4 - i P r	3- Me	2- Me	2- Me	4 - i P r	3- Me
11-14	4 - i P r	Н	2- Me	2- Me	4-iPr	Н
12-14	4 - i P r	H	2- Me	2- Me	4-iPr	н
11-15	3- Me	Н	н	Н	3- Me	Н
12-15	3- Me	н	н	н	3- Me	H
11-16	3- Me	Н	2- Me	2- Me	3- Me	H
12-16	3- Me	H	2- Me	2- Me	3- Me	н
11-17	3, 4-Me	H	Н	Н	3.4-Ne	Н
12-17	3.4-Ne	H	Н	Н	3.4-Me	Н
11-18	3. 4-Ne	Н	2- Me	2- Me	3, 4-Me	Н
12-18	3,4-Me	H	2- Me	2- Me	3.4-Me	H
11-19	3, 4-Ne	4- Me	H ·	Н	3.4-Me	4- Me
12-19	3.4-Me	4- Me	H	Н.	3.4-Me	4- Me
11-20	3, 4-Me	4- Me	2- Me	2- Me	3.4-Me	4- Me
12-20	3,4-Me	4 - Me	2- Me	2- Me	3.4- <b>¥</b> e	4- Me
11-21	3.4-Me	3- Me	Н	Н	3.4-Me	3- Me
12-21	3.4-Me	3- Me	Н	Н	3. 4 <b>-¥</b> e	3- Me
11-22	3,4-Me	3- Me	2- Me	2- Me	3, 4-Ne	3- Me
12-22	3.4-Me	3- Me	2- Me	2- Me	3.4-Me	3- Me
11 -23	4 - t B u	Н	Н	Н	4 - t B u	Н
12-23	4 - t B u	H	Н	Н	4 - t B u	Ħ
11-24	4 - t B u	4- Me	Н	Н	4 - t B u	4- Me
12-24	4 - t B u	4- Me	H	H	4 - t B u	4- Me

[0031]

【表3】

化合物 番号	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	R <sup>5</sup>	R <sup>6</sup>
11-25	4 - t B u	4- Me	2- Me	2- Me	4 - t B u	4- Me
12-25	4 - t B u	4- Me	2- Me	2- Me	4 - t B u	4- Me
11-26	4 - t B u	3- Me	2- Me	2- Me	4 - t B u	3- Me
12-26	4 - t B u	3- Me	2- Me	2- Me	4 - t B u	3 - Me
11-27	4 – t B u	Н	2- Me	2- Me	4 - t B u	Н
12-27	4 - t B u	H	2- Me	2- Me	4 - t Bu	н
11-28	3.5-Me	Н	2- Me	2- Me	3.5-Me	Н
12-28	3,5-Me	Н	2- Me	2- Me	3.5-Me	H
11-29	3.5-Me	4- Me	2- Me	2- Me	3.5-Me	4- Me
12-29	3,5-Me	4- Me	2- Me	2- Me	3.5-Me	4- Me
11-30	3.5-Me	4- E t	3 - Me	3- Me	3.5-Me	4- E t
12-30	3.5-Me	4- E t	3- Me	3- Me	3.5-Me	4- E t
11-31	3.5-Me	4 - i P r	2- Me	2- Me	3.5-Me	4-iPr
12-31	3,5-Me	4 - i P r	2- Me	2- Me	3.5-Me	4-iPr
11-32	2.3-Me	Н	2- Me	2- Me	2.3-Me	Н
12-32	2.3-Me	H	2- Me	2- Me	2.3-Me	Н
11-33	2.3-Me	4- Me	3- Me	3- Me	2.3-Me	4- Me
12-33	2.3-Me	4- Me	3 - Me	3- Me	2.3-Me	4- Me
11-34	2.3-Me	4- E t	3- Me	3- Me	2.3-Me	4- E t
12-34	2,3-Me	4- E t	3 - Me	3- Me	2.3-Me	4- E t
11-35	2.3-Me	4 - i P r	2- Me	2- Me	2,3-Me	4 - i P r
12-35	2.3-Me	4-iPr	2- Me	2- Me	2.3-Me	4 - i P r
11-36	4 - M e 0	Н	Н	Н	4 - M e 0	Н
12-36	4 - M e O	Н	Н	Н	4 - M e O	H

[0032]

【表4】

化合物 番号	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	R <sup>5</sup>	R <sup>6</sup>
11-37	4 - M e O	Н	2- Me	2- Me	4 - M e 0	Н
12-37	4 - M e 0	H	2- Me	2- Me	4 - M e 0	H
11-38	4 - N e O	3- Me	2- Me	2- Me	4-Ne0	3- Me
12-38	4-Ne0	3 - Me	2- Me	2- Me	4-Ne0	3- Me
11-39	4- E t	2- Me	3- Me	3- Me	4- E t	2- Me
12-39	4- E t	2- Me	3- Me	3- Me	4- E t	2- Me
11-40	4 - i P r	2- M e	3- Me	3- Me	4-iPr	2- Me
12-40	4-iPr	2- Me	3- Me	3- M e	4-iPr	2- Me
11-41	4 - Me	Н	Н	Н	4- E t	Н
12-41	4 - Me	Н	H	Н	4- E t	н
11-42	4- Me	н	Н	Н	4-iPr	Н
12-42	4- Me	Н	Н	H	4-iPr	H
11-43	4- E t	3- Me	2- Me	Н	4-iPr	Н
12-43	4- E t	3 - Me	2- Me	Н	4-iPr	н
11-44	4 - E t	Н	Н	Н	4 - i P r	Н
12-44	4- E t	Н	Н	H	4 - i P r	Н

【0033】上記表 1~4中、Meはメチル基、Etは ル基、MeOはメトキシ基を示す。2-、3-および4 エチル基、iPrはイソプロピル基、tBuはtープチ 50 ーは、フェニル基における置換位置を示す。2,3-、

3,5 ー等のように 2以上の数字がある場合には、該当するフェニル基が 2以上の基を有していることを示す。すなわち、例えば 4-i P r はフェニル基の 4 位(パラ位)にイソプロピル基が置換していることを示し、 2,3 -M e はフェニル基の 2 位(オルト位)と 3 位(メタ

位)にメチル基が置換していることを示す。なお、置換 位置の番号は下記式に示すとおりである。

[0034]

【化13】

【0035】(式中、R $^1$ ~R $^6$  およびm~q は前記と同じである。)

本発明のスチルベン誘導体(1) の合成方法を、 $R^1 = R^5$ 、m = p、 $R^2 = R^3 = R^4 = R^6$  で、かつ $R^2$  が水素原子である場合を例にとって説明する。この場合、まず、下記反応式(I) に示すように、出発原料であるアニリン誘導体(90)とヨードベンゼン(91)とを1:2(モル 20比)の割合でニトロベンゼン等の溶媒中に加え、無水炭

酸カリウム、銅等の触媒とともに還流してトリフェニルアミン誘導体(92)を合成した後、そのトリフェニルアミン誘導体(92)をジメチルホルムアミド、Nーメチルホルムアニリド等の溶媒中に加え、オキシ塩化リンの存在下で反応させてホルミル化する。

【0036】反応式(I):

[0037]

【化14】

$$(90)$$
  $(91)$   $(92)$   $(92)$   $(91)$   $(92)$ 

【0038】 (式中、R<sup>1</sup> およびmは前記と同じである。)

次いで、下記反応式(II)に示すように、テトラヒドロフラン等の溶媒に溶解したビスリン酸エステル誘導体(94)に対して、トリフェニルアミンのホルミル体(93)を1:

2 (モル比)の割合で滴下し、反応させることにより、 スチルベン誘導体(1')が得られる。

【0039】反応式(II):

[0040]

【化15】

$$(R^{1})_{m} \qquad Q \qquad CH_{2} - P(OC_{2}H_{5})_{2}$$

$$+ (C_{2}H_{5}O)_{2}P - CH_{2} \qquad (94)$$

$$(R^{1})_{m} \qquad (R^{1})_{m}$$

【0041】 (式中、 $R^1$  およびmは前記と同じである。)

一方、スチルベン誘導体(1) の構造が左右非対称である場合には、例えば下記反応式(III) に示すように、まず、メチルベンジルクロライド(95)に亜リン酸トリエステルを反応させてモノリン酸エステル(96)を合成し、こ

れに上記トリフェニルアミンのホルミル体(93) を反応 させてモノスチルベン誘導体(97)を得、さらにそれをク ロロ化した誘導体(98)を得る。

18

【0042】反応式(III) :

[0043]

【化16】

$$\begin{array}{c|c}
CH_2CI & CH_2-P(OC_2H_5)_2 \\
\hline
CH_3 & CH_3 \\
(95) & (96)
\end{array}$$

$$(R^{1})_{m}$$

$$R^{3}$$

$$(R^{2})_{n}$$

$$(93')$$

$$(R^{2})_{n}$$

$$(97)$$

$$\begin{array}{c} (R^1)_m \\ R^3 \\ CH=CH- \\ CH_2CI \\ (R^2)_n \end{array}$$

【0044】(式中、R $^1$   $\sim$  R $^3$  、mおよびnは前記と同じである。)

次いで、下記反応式(IV)に示すように、上記誘導体(98) に亜リン酸トリエステルを反応させて化合物(99)を得、 これにトリフェニルアミンのホルミル体(93'')を反応さ せることにより、スチルベン誘導体(1) が得られる。

反応式(IV): 【0045】

【化17】

$$(R^{1})_{m}$$

$$(R^{2})_{n}$$

$$(R^{2})_{n}$$

$$(R^{2})_{n}$$

$$(R^{3})_{m}$$

$$(R^{3})_{m}$$

$$(R^{3})_{m}$$

$$(R^{2})_{n}$$

$$(R^{2})_{n}$$

$$(R^{2})_{n}$$

$$(R^{3})_{p}$$

$$(R^{2})_{n}$$

$$(R^{3})_{p}$$

$$(R^{4})_{m}$$

$$(R^{5})_{p}$$

【0046】(式中、 $R^1 \sim R^6$  および $m \sim q$  は前記と同じである。)

次に、本発明の電子写真感光体に用いられる電子輸送剤について説明する。前述の一般式(2)~(5)で表される電子輸送剤中、R<sup>7</sup>~R<sup>21</sup>に相当するアルキル基、アルコキシ基、アリール基、アラルキル基およびハロゲン原子としては、前述と同様な基があげられる。シクロアルキル基としては、例えばシクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロペナシル、シクロペプチル、シクロオクチル等の炭素数3~8の基があげられる。ハロゲン化アルキル基におけるアルキル基およびハロゲン原子としては、前述と同様な基があげられる。

【0047】上記基に置換してもよい置換基としては、例えばハロゲン原子、アミノ基、水酸基、エステル化されてもよいカルボキシル基、シアノ基、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~6のアルコキシ基、アリール基を有することのある炭素数2~6のアルケニル基等があげられる。前記アルケニル基としては、例えばビニル、アリル、2ープテニル、3ープテニル、1ーメチルアリル、2ーペンテニル、2ーへキセニル等の炭素数が2~6の基があげられる。

【0048】次に、本発明の電子写真感光体について説明する。本発明の電子写真感光体は、導電性基体上に、

前記一般式(1) で表されるスチルベン誘導体(正孔輸送 剤)の1種または2種以上と、電子輸送剤とを含有した 単一の感光層を設けてなる単層型感光体である。前記感 光層は、一般式(1) で表されるスチルベン誘導体(正孔 輸送剤)、電子輸送剤、電荷発生剤および結着樹脂を適 当な溶媒に溶解または分散させ、得られた塗布液を導電 性基体上に塗布し、乾燥させることで形成される。

【0049】本発明の電子写真感光体は、正帯電および 負帯電のいずれにも適用可能であるが、前述の理由によ り、正帯電型で使用するのが好ましい。また、本発明の 電子写真感光体は、単一の感光層中に電荷輸送剤として 正孔輸送剤と電子輸送剤とを併用していることから、電 荷発生剤と電荷輸送剤との間の電荷の授受が効率よく行 われる。従って、本発明によれば、高感度の感光体が得 られる。

【0050】次に、本発明の電子写真感光体に用いられる種々の材料について説明する。

《電荷発生剤》本発明に用いられる電荷発生剤としては、例えば下記の一般式(CG1)  $\sim$ (CG12)で表される化合物があげられる。

(CG1) 無金属フタロシアニン

[0051]

【化18】

(CG1)

【0052】(CG2) オキソチタニルフタロシアニン 【0053】

【化19】

(CG2)

【0054】(CG3) ペリレン顔料

[0055]

【化20】

【0056】(式中、R<sup>g1</sup> およびR<sup>g2</sup> は同一または異なって、炭素数が18以下の置換または未置換のアルキル基、シクロアルキル基、アリール基、アルカノイル基またはアラルキル基を示す。)

(CG4) ビスアゾ顔料

[0057]

【化21】

$$Cp^1-N=N-Q-N=N-Cp^2$$

(CG4)

【0058】〔式中、Cp¹ およびCp² は同一または 異なってカップラー残基を示し、Qは次式:

[0059]

【化22】

22

【0060】(式中、 $R^{g3}$  は水素原子、アルキル基、アリール基または複素環式基を示し、アルキル基、アリール基または複素環式基は置換基を有していてもよい。 $\omega$  は 0 または 1 を示す。)

[0061]

【化23】

【0062】(式中、 $R^{st}$  および $R^{st}$  は同一または異なって、水素原子、炭素数 $1\sim5$ のアルキル基、ハロゲン原子、アルコキシ基、アリール基またはアラルキル基を示す。)

[0063]

【化24】

30

【0064】(式中、R<sup>g6</sup>は水素原子、エチル基、クロロエチル基またはヒドロキシエチル基を示す。)

[0065]

【化25】

【0066】または

[0067]

【化26】

【0068】(式中、R<sup>g7</sup>、R<sup>g8</sup> およびR<sup>g9</sup> は同一また は異なって、水素原子、炭素数1~5のアルキル基、ハ ロゲン原子、アルコキシ基、アリール基またはアラルキ ル基を示す。) で表される基を示す。]

(CG5) ジチオケトピロロピロール顔料

[0069]

24

(CG5)

【0070】 (式中、Rg10 およびRg11 は同一または 異なって、水素原子、アルキル基、アルコキシ基または ハロゲン原子を示し、Rgl2 およびRgl3 は同一または 異なって、水素原子、アルキル基またはアリール基を示

(CG6) 無金属ナフタロシアニン顔料

[0071]

【化28】

(CG6)

【0072】(式中、Rg14 、Rg15 、Rg16 およびR g17 は同一または異なって、水素原子、アルキル基、ア 40 ルコキシ基またはハロゲン原子を示す。)

(CG7) 金属ナフタロシアニン顔料

[0073]

【化29】

(CG7)

【0074】(式中、 $R^{g18}$  、 $R^{g19}$  、 $R^{g20}$  およびR 20  $g^{21}$  は同一または異なって、水素原子、アルキル基、アルコキシ基またはハロゲン原子を示し、MはT i または Vを示す。)

(CG8) スクアライン顔料

[0075]

【化30】

#### (CG8)

【0076】(式中、 $R^{822}$  および $R^{823}$  は同一または 異なって、水素原子、アルキル基、アルコキシ基または ハロゲン原子を示す。)

(CG9) トリスアゾ顔料

[0077]

【化31】

【0078】(式中、 $Cp^3$ 、 $Cp^4$  および $Cp^5$  は同一または異なって、カップラー残基を示す。)

(CG10)インジゴ顔料

[0079]

【化32】

#### (CG10)

【0080】(式中、 $R^{g24}$  および $R^{g25}$  は同一または 異なって、水素原子、アルキル基またはアリール基を示 し、Zは酸素原子または硫黄原子を示す。)

(CG11)アズレニウム顔料

[0081]

【化33】

(CG11)

【0082】(式中、 $R^{g26}$  および $R^{g27}$  は同一または異なって、水素原子、アルキル基またはアリール基を示す。)

【化34】

28

(CG12)シアニン顔料 【0083】

R<sub>928</sub> CH=CH)<sub>3</sub> CH R<sub>931</sub>

(CG12)

【0084】(式中、 $R^{g28}$  および $R^{g29}$  は同一または 異なって、水素原子、アルキル基、アルコキシ基または 10 ハロゲン原子を示し、 $R^{g30}$  および $R^{g31}$  は同一または 異なって、水素原子、アルキル基またはアリール基を示 す。)

上記例示の電荷発生剤において、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アラルキル基、シクロアルキル基、ハロゲン原子としては、前述と同様な基があげられる。 炭素数18以下の置換または未置換のアルキル基は、炭素数1~6のアルキル基に加えて、ヘプチル、オクチル、ノニル、デシル、ドデシル、トリデシル、ペンタデシル、オクタデシル等を含む基である。アルカノイル基 20としては、例えばホルミル、アセチル、プロピオニル、ブチリル、ペンタノイル、ヘキサノイル等があげられる。

【0085】複素環式基としては、例えばチエニル、フリル、ピロリル、ピロリジニル、オキサゾリル、イソオ

キサゾリル、チアゾリル、イソチアゾリル、イミダゾリル、2Hーイミダゾリル、ピラゾリル、トリアゾリル、テトラゾリル、ピラニル、ピリジル、ピペリジル、ピペリジノ、3ーモルホリニル、モルホリノ、チアゾリル等があげられる。また、芳香族環と縮合した複素環式基であってもよい。

【0086】上記基に置換してもよい置換基としては、例えばハロゲン原子、アミノ基、水酸基、エステル化されてもよいカルボキシル基、シアノ基、炭素数  $1\sim6$ のアルキル基、炭素数  $1\sim6$ のアルコキシ基、アリール基を有することのある炭素数  $2\sim6$ のアルケニル基等があげられる。 $Cp^1$ 、 $Cp^2$ 、 $Cp^3$ 、 $Cp^4$  および $Cp^5$ で表されるカップラー残基としては、例えば下記一般式(Cp-1) $\sim$ (Cp-11) に示す基があげられる。

【0087】 【化35】

$$R^{g33}$$
 $R^{g33}$ 
 $R^{g33}$ 
 $R^{g33}$ 
 $R^{g33}$ 
 $R^{g33}$ 
 $R^{g33}$ 
 $R^{g33}$ 
 $R^{g33}$ 

HO HO 
$$R^{932}$$
  $R^{933}$  (Cp-3)  $R^{935}$   $R^{934}$   $R^{933}$  (Cp-4)

[0088]

【化36】

【0089】各式中、R®22 は、カルバモイル基、スルファモイル基、アロファノイル基、オキサモイル基、アントラニロイル基、カルバゾイル基、グリシル基、ヒダントイル基、フタルアモイル基またはスクシンアモイル基を示す。これらの基は、ハロゲン原子、置換基を有してもよいフェニル基、置換基を有してもよいナフチル基、ニトロ基、シアノ基、アルキル基、アルケニル基、カルボニル基、カルボキシル基等の置換基を有していてもよい。

【0090】R<sup>833</sup> は、ベンゼン環と縮合して芳香族環、多環式炭化水素または複素環を形成するのに必要な原子団を示し、これらの環は前記と同様な置換基を有してもよい。R<sup>834</sup> は、酸素原子、硫黄原子またはイミノ基を示す。R<sup>835</sup> は、2価の鎖式炭化水素基または芳香族炭化水素基を示し、これらの基は前記と同様な置換基を有してもよい。

【0091】R®<sup>36</sup> は、アルキル基、アラルキル基、アリール基または複素環基を表し、これらの基は前記と同様な置換基を有してもよい。R®<sup>37</sup> は、2価の鎖式炭化 40 水素基もしくは芳香族炭化水素基とともに、または上記基(Cp-1)~(Cp-11) 中の2つの窒素原子とともに複素環を形成するのに必要な原子団を表し、これらの環は前記と同様な置換基を有してもよい。

【0092】R<sup>638</sup> は、水素原子、アルキル基、アミノ基、カルバモイル基、スルファモイル基、アロファノイル基、カルボキシル基、アルコキシカルボニル基、アリール基またはシアノ基を示し、水素原子以外の基は前記と同様な置換基を有していてもよい。R<sup>639</sup> は、アルキル基またはアリール基を示し、これらの基は前記と同様 50

な置換基を有してもよい。

【0093】アルケニル基としては、例えばビニル、アリル、2-プテニル、3-プテニル、1-メチルアリル、2-ペンテニル、2-ヘキセニル等の炭素数が2~6のアルケニル基があげられる。前記 $R^{83}$  において、ベンゼン環と縮合して芳香族環を形成するのに必要な原子団としては、例えばメチレン、エチレン、トリメチレン、テトラメチレン等の炭素数1~4のアルキレン基があげられる。

【0094】上記R<sup>833</sup> とベンゼン環との縮合により形成される芳香族環としては、例えばナフタリン環、アントラセン環、フェナントレン環、ピレン環、クリセン環、ナフタセン環等があげられる。またR<sup>833</sup> において、ベンゼン環と縮合して多環式炭化水素を形成するのに必要な原子団としては、例えば上記炭素数1~4のアルキレン基や、あるいはカルバゾール環、ベンゾカルバゾール環、ジベンゾフラン環等があげられる。

【0095】またRe<sup>33</sup> において、ベンゼン環と縮合して複素環を形成するのに必要な原子団としては、例えばベンゾフラニル、ベンゾチオフェニル、インドリル、1Hーインドリル、ベンゾオキサゾリル、ベンゾチアゾリル、1Hーインダドリル、ベンゾイミダゾリル、クロメニル、クロマニル、イソクロマニル、キノリニル、イソキノリニル、シンノリニル、フタラジニル、キナゾニリル、キノキサリニル、ジベンゾフラニル、カルバゾリル、キサンテニル、アクリジニル、フェナントリジニル、フェナジニル、フェノキサジニル、チアントレニル等があげられる。

【0096】上記R®33 とベンゼン環との縮合により形

成される芳香族性複素環基としては、例えばチエニル、フリル、ピロリル、オキサゾリル、イソオキサゾリル、チアゾリル、イソチアゾリル、イミダゾリル、ピラゾリル、トリアゾリル、テトラゾリル、ピリジル、チアゾリルがあげられる。また、さらに他の芳香族環と縮合した複素環基(例えばベンゾフラニル、ベンゾイミダゾリル、ベンゾオキサゾリル、ベンゾチアゾリル、キノリル等)であってもよい。

【0097】前記 $R^{g35}$  、 $R^{g37}$  において、2価の鎖式炭化水素基としては、エチレン、トリメチレン、テトラ 10メチレン等があげられ、2価の芳香族炭化水素基としては、フェニレン、ナフチレン、フェナントリレン等があげられる。前記 $R^{g36}$  において、複素環基としては、ピリジル、ピラジル、チエニル、ピラニル、インドリル等があげられる。

【0098】前記R<sup>837</sup> において、2つの窒素原子とともに複素環を形成するのに必要な原子団としては、例えばフェニレン、ナフチレン、フェナントリレン、エチレン、トリメチレン、テトラメチレン等があげられる。上記R<sup>837</sup> と、2つの窒素原子とにより形成される芳香族 20性複素環基としては、例えばベンゾイミダゾール、ベンゾ【f】ベンゾイミダゾール、ジベンゾ【e,g】ベンゾイミダゾール、ベンゾピリミジン等があげられる。これらの基は前記と同様な置換基を有してもよい。

【0099】前記R838 において、アルコキシカルボニル基としては、例えばメトキシカルボニル、エトキシカルボニル、プロポキシカルボニル、ブトキシカルボニル等の基があげられる。本発明においては、上記例示の電荷発生剤のほかに、例えばセレン、セレンーテルル、セレンーヒ素、硫化カドミウム、アモルファスシリコン等 30の無機光導電材料の粉末や、ピリリウム塩、アンサンスロン系顔料、トリフェニルメタン系顔料、スレン系顔料、トルイジン系顔料、ピラゾリン系顔料、キナクリドン系顔料等の従来公知の電荷発生剤を用いることができる。

【0100】また、上記例示の電荷発生剤は、所望の領域に吸収波長を有するように、単独でまたは2種以上を混合して用いられる。上記例示の電荷発生剤のうち、特に半導体レーザー等の光源を使用したレーザービームプリンタやファクシミリ等のデジタル光学系の画像形成装置には、700nm以上の波長領域に感度を有する感光体が必要となるため、例えば前記一般式(CG1)で表される無金属フタロシアニンや一般式(CG2)で表されるオキソチタニルフタロシアニン等のフタロシアニン系顔料が好適に用いられる。なお、上記フタロシアニン系顔料の結晶形については特に限定されず、種々のものを使用できる。

【0101】一方、ハロゲンランプ等の白色の光源を使用した静電式複写機等のアナログ光学系の画像形成装置には、可視領域に感度を有する感光体が必要となるた

め、例えば前記一般式(CG3) で表されるペリレン顔料や一般式(CG4) で表されるピスアゾ顔料等が好適に用いられる。

《正孔輸送剤》本発明の電子写真感光体においては、正 孔輸送剤である本発明のスチルベン誘導体(1) ととも に、従来公知の他の正孔輸送剤を感光層に含有させても よい。

【0102】かかる正孔輸送剤としては、高い正孔輸送能を有する種々の化合物、例えば下記の一般式(HT1)~(HT13)で表される化合物等があげられる。

(HT1)

[0103]

【0104】(式中、 $R^{h1}$ 、 $R^{h2}$ 、 $R^{h3}$ 、 $R^{h4}$  、 $R^{h5}$  および $R^{h6}$  は同一または異なって、ハロゲン原子、置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいアルコキシ基または置換基を有してもよいアリール基を示す。 a および b は同一または異なって  $0\sim4$  の整数を示し、c、d、e および f は同一または異なって  $0\sim5$  の整数を示す。なお、a、b、c、d、e または f が 2 以上のとき、各 $R^{h1}$  、 $R^{h2}$  、 $R^{h3}$  、 $R^{h4}$  、 $R^{h5}$  および $R^{h6}$  は異なっていてもよい。)

(HT2)

[0105]

【化38】

$$(R^{h7})_{g}$$
  $(R^{h9})_{i}$   $(R^{h9})_{i}$   $(R^{h10})_{j}$ 

(HT2)

【0 1 0 6】(式中、 $R^{h7}$ 、 $R^{h8}$ 、 $R^{h9}$  、 $R^{h10}$  および  $R^{h11}$  は同一または異なって、ハロゲン原子、置換基を 有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいアリール基を示す。 g、h、i および j は同一または異なって  $0\sim5$  の整数 を示し、k は  $1\sim4$  の整数を示す。 なお、 g、h、i、 j または k が 2 以上のとき、各  $R^{h7}$ 、 $R^{h8}$ 、 $R^{h9}$ 、 $R^{h10}$  および  $R^{h11}$  は異なっていてもよい。)

hi5 は同一または異なって、ハロゲン原子、置換基を有

してもよいアルキル基、置換基を有してもよいアルコキ

シ基または置換基を有してもよいアリール基を示す。R h16 はハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、置換基を有

してもよいアルキル基、置換基を有してもよいアルコキ シ基または置換基を有してもよいアリール基を示す。 m、n、oおよびpは同一または異なって、0~5の整 数を示す。qは $0\sim6$ の整数を示す。なお、m、n、 o、pまたはqが2以上のとき、各Rh12 、Rh13 、R hl4 、 Rhl5 および Rhl6 は異なっていてもよい。)

(HT3)

[0107]

【0108】 (式中、Rh12 、Rh13 、Rh14 およびR

$$(R^{h18})_s$$
  $(R^{h19})_t$   $(R^{h20})_u$   $(HT4)$ 

(HT4) [0109]

【化40】

【0110】(式中、Rh17 、Rh18 、Rh19 およびR h20 は同一または異なって、水素原子、ハロゲン原子、 置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよ いアルコキシ基または置換基を有してもよいアリール基 を示す。r、s、t およびuは同一または異なって、1~5の整数を示す。なお、r、s、tまたはuが2以上 のとき、各Rh17 、Rh18 、Rh19 およびRh20 は異な 30 っていてもよい。)

(HT5)

[0111]

【化41】

【0112】(式中、Rh21 およびRh22 は同一または 異なって、水素原子、ハロゲン原子、アルキル基または アルコキシ基を示す。Rh23 、Rh24 、Rh25 およびR h26 は同一または異なって、水素原子、アルキル基また はアリール基を示す。)

(HT6)

【O114】 (式中、Rh27 、Rh28 およびRh29 は同 一または異なって、水素原子、ハロゲン原子、アルキル 基またはアルコキシ基を示す。)

(HT7)

[0115]

(HT7)

【0116】 (式中、Rh30 、Rh31 、Rh32 およびR h33 は同一または異なって、水素原子、ハロゲン原子、 アルキル基またはアルコキシ基を示す。)

(HT8) 50

[0117]

[(E 4 4]]

Rh34

Rh36

Rh36

Rh36

Rh38

(HT8)

【 0 1 1 8 】 (式中、R h34 、 R h35 、 R h36 、 R h37 および R h38 は同一または異なって、水素原子、ハロゲン原子、アルキル基またはアルコキシ基を示す。) (HT9)

[0119]

【化45】

【0.120】(式中、 $R^{h39}$  は水素原子またはアルキル基を示し、 $R^{h40}$  、 $R^{h41}$  および $R^{h42}$  は同一または異なって、水素原子、ハロゲン原子、アルキル基またはアルコキシ基を示す。)

(HT10)

[0121]

【化46】

【0122】(式中、 $R^{h43}$  、 $R^{h44}$  および $R^{h45}$  は同一または異なって、水素原子、ハロゲン原子、アルキル基またはアルコキシ基を示す。)

(HT11)

[0123]

【化47】

36

【0124】(式中、Rh6 およびRh7 は同一または 異なって、水素原子、ハロゲン原子、置換基を有しても よいアルキル基または置換基を有してもよいアルコキシ 基を示す。Rh48 およびRh49 は同一または異なって、 水素原子、置換基を有してもよいアルキル基または置換 基を有してもよいアリール基を示す。)

(HT12)

[0125]

$$(R^{h50})_v$$
 $(R^{h54})_z$ 
 $(R^{h52})_x$ 
 $(R^{h53})_y$ 
 $(R^{h55})_y$ 
 $(R^{h55})_y$ 
 $(R^{h55})_y$ 
 $(R^{h55})_y$ 

【0126】(式中、 $R^{h50}$  、 $R^{h51}$  、 $R^{h52}$  、  $R^{h53}$  、  $R^{h54}$  および $R^{h55}$  は同一または異なって、置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいアルコキシ基または置換基を有してもよいアリール基を示す。  $\alpha$  は  $1\sim1$  0の整数を示し、v、w、x、y、z および $\beta$  は同一または異なって  $0\sim2$  の整数を示す。 なお、v、w、x、y、z または $\beta$  が 2 のとき、各z0 、 z0 、

(HT13)

[0127]

【 0 1 2 8 】 (式中、 R h56 、 R h57 、 R h58 および R h59 は同一または異なって、水素原子、ハロゲン原子、50 アルキル基またはアルコキシ基を示し、Φは次式:

【0130】で表される基 $(\Phi-1)$ 、 $(\Phi-2)$ また は(Φ-3)を示す。) -:

上記例示の正孔輸送剤において、アルキル基、アルコキ シ基、アリール基、アラルキル基およびハロゲン原子と しては、前述と同様な基があげられる。上記基に置換し てもよい置換基としては、例えばハロゲン原子、アミノ 基、水酸基、エステル化されていてもよいカルボキシル 基、シアノ基、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~ 6のアルコキシ基、アリール基を有することのある炭素 数2~6のアルケニル基等があげられる。 置換基の置換 位置については特に限定されない。

【0131】また、上記例示の正孔輸送剤(HT1) ~(HT1 3)とともに、またはこれに代えて、従来公知の正孔輸送 物質、すなわち2, 5-ジ(4-メチルアミノフェニ ル) -1, 3, 4-オキサジアゾール等のオキサジアゾ ール系化合物、9-(4-ジエチルアミノスチリル)ア 30 ントラセン等のスチリル系化合物、ポリビニルカルバゾ ール等のカルバゾール系化合物、有機ポリシラン化合 物、1-フェニル-3-(p-ジメチルアミノフェニ ル)ピラゾリン等のピラゾリン系化合物、ヒドラゾン系 化合物、トリフェニルアミン系化合物、インドール系化 合物、オキサゾール系化合物、イソオキサゾール系化合 物、チアゾール系化合物、チアジアゾール系化合物、イ ミダゾール系化合物、ピラゾール系化合物、トリアゾー ル系化合物等の含窒素環式化合物、縮合多環式化合物等 を用いることもできる。

【0132】本発明において、正孔輸送剤は1種のみを 用いるほか、2種以上を混合して用いてもよい。また、 ポリビニルカルバゾール等の成膜性を有する正孔輸送剤 を用いる場合には、結着樹脂は必ずしも必要でない。

《電子輸送剤》本発明に用いられる電子輸送剤として は、前述の一般式(2)で表されるジフェノキノン誘導 体、一般式(3) で表されるナフトキノン誘導体および一 般式(4) ~(5) で表されるジアザナフト [2, 3-b] フルオレン誘導体が、正孔輸送剤であるスチルベン誘導 体(1) との組合せのうえで好ましいが、かかる電子輸送 50 剤(2) ~(5) のほかに、高い電子輸送能を有する種々の 化合物、例えば下記の一般式(ET1) ~(ET13)で表される 化合物を用いることができる。

38

[0133] (ET1)

[0134]

【化51】

(ET1)

【0135】(式中、Rel、Rel、Rel、Rel、RelおよびR e5 は同一または異なって、水素原子、置換基を有しても よいアルキル基、置換基を有してもよいアルコキシ基、 置換基を有してもよいアリール基、置換基を有してもよ いアラルキル基、置換基を有してもよいフェノキシ基ま たはハロゲン原子を示す。)

(ET2)

[0136]

【化52】

$$(R^{e7})_{\gamma}$$
 $O_2N$ 
 $R^{e6}$ 
 $NO_2$ 
 $NO_2$ 

(ET2)

【0137】(式中、R<sup>c6</sup> はアルキル基、R<sup>c7</sup> は置換基 を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいアル コキシ基、置換基を有してもよいアリール基、置換基を 有してもよいアラルキル基、ハロゲン原子またはハロゲ ン化アルキル基を示す。yは0~5の整数を示す。な お、yが2以上のとき、各Rel は互いに異なっていても よい。)

(ET3)

[0138]

【化53】

( R<sup>e8</sup>)<sub>E</sub> (R<sup>e8</sup>)<sub>δ</sub>

【0139】(式中、 $R^{e8}$ および $R^{e9}$ は同一または異なって、アルキル基を示す。 $\delta$ は1~4の整数を示し、 $\epsilon$ は0~4の整数を示す。なお、 $\delta$ および $\epsilon$ が2以上のとき、各 $R^{e8}$ および $R^{e9}$ は異なっていてもよい。) (ET4)

[0140]

【化54】

$$(ET4)$$

【0141】(式中、 $R^{el0}$  はアルキル基、アリール基、アラルキル基、アルコキシ基、ハロゲン化アルキル基またはハロゲン原子を示す。 $\zeta$ は $0\sim4$ 、 $\eta$ は $0\sim5$ の整数を示す。なお、 $\eta$ が2以上のとき、各 $R^{el0}$  は異なっていてもよい。)

(ET5)

[0142]

【化55】

【0143】(式中、 $R^{ell}$  はアルキル基を示し、 $\sigma$ は  $1\sim4$ の整数を示す。なお、 $\sigma$ が2以上のとき、各 $R^{ell}$  は異なっていてもよい。)

(ET6)

[0144]

【化56】

【0145】(式中、Rei2 およびRei3 は同一または 異なって、水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アリ ール基、アラルキルオキシカルボニル基、アルコキシ 基、水酸基、ニトロ基またはシアノ基を示す。Xは酸素 原子、=N-CN基または=C(CN)2 基を示す。)

40

原子、一N-CN塞よだね-C(( (ET7)

[0146] [化57]

R<sup>e14</sup> (R<sup>e15</sup>)<sub>λ</sub>

【0147】(式中、 $R^{el4}$  は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基または置換基を有してもよいフェニル基を示し、 $R^{el5}$  はハロゲン原子、置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいフェニル基、アルコキシカルボニル基、N-アルキルカルバモイル基、シアノ基またはニトロ基を示す。 $\lambda$ は0~3の整数を示す。なお、 $\lambda$ が2以上のとき、各 $R^{el5}$  は互いに異なっていてもよい。)

(ET8)

[0148]

【化58】

$$(NO_2)_{\theta} \quad (ET8)$$

o 【0149】(式中、θは1~2の整数を示す。)

(ET9)

[0150]

【化59】

【0151】(式中、 $R^{el6}$  および $R^{el7}$  は同一または異なって、ハロゲン原子、置換基を有してもよいアルキル基、シアノ基、ニトロ基、アルコキシカルボニル基を示す。vおよび $\xi$ は0~3の整数を示す。なお、vまたは $\xi$ が2以上のとき、各 $R^{el6}$  および $R^{el7}$  は互いに異なっていてもよい。)

(ET10)

[0152]

【化60】

【0153】(式中、Rel8 およびRel9 は同一または 異なって、フェニル基、多環芳香族基または複素環式基 を示し、これらの基は置換基を有していてもよい。) (ET11)

[0154]

【0155】(式中、 $R^{e20}$  はアミノ基、ジアルキルアミノ基、アルコキシ基、アルキル基またはフェニル基を示し、 $\pi$ は1~2の整数を示す。なお、 $\pi$ が2のとき、各 $R^{e20}$  は互いに異なっていてもよい。)

(ET12)

[0156]

【化62】

(ET12)

【0157】(式中、 $R^{e21}$  は水素原子、アルキル基、アリール基、アルコキシ基またはアラルキル基を示す。)

(ET13)

[0158]

【化63】

【0159】(式中、 $R^{e22}$  はハロゲン原子、置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいフェニル基、アルコキシカルボニル基、N-アルキルカルバモ 40 イル基、シアノ基またはニトロ基を示す。 $\mu$ は0~3の整数を示す。なお、 $\mu$ が2以上のとき、各 $R^{e22}$  は互いに異なっていてもよい。)

上記例示の電子輸送剤において、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アラルキル基、シクロアルキル基、ハロゲン化アルキル基、アルコキシカルボニル基、複素環式基およびハロゲン原子としては、前述と同様な基があげられる。

【0160】多環芳香族基としては、例えばナフチル、フェナントリル、アントリル等があげられる。アラルキ 50

ルオキシカルボニル基としては、アラルキル部分が前述した各種のアラルキル基であるものがあげられる。Nーアルキルカルバモイル基としては、アルキル部分が前述した各種のアルキル基であるものがあげられる。ジアルキルアミノ基としては、アルキル部分が前述した各種のアルキル基であるものがあげられる。なおアミノに置換する2つのアルキルは同一でも、互いに異なっていてもよい。

【0161】上記各基に置換してもよい置換基としては、例えばハロゲン原子、アミノ基、水酸基、エステル化されていてもよいカルボキシル基、シアノ基、炭素数1~6のアルコキシ基、アリール基を有することのある炭素数2~6のアルケニル基等があげられる。置換基の置換位置については特に限定されない。

【0162】また、上記例示の電子輸送剤(ETI)~(ETI 3)のほかに、従来公知の電子輸送物質、すなわち例えばベンゾキノン系化合物、マロノニトリル、チオピラン系化合物、テトラシアノエチレン、2,4,8-トリニトロチオキサントン、ジニトロベンゼン、ジニトロアントラセン、ジニトロアクリジン、ニトロアントラキノン、ガニトロアントラキノン、無水コハク酸、無水マレイン酸、ジプロモ無水マレイン酸等を用いることもできる。【0163】本発明において電子輸送剤は、1種のみを用いるほか、2種以上を混合して用いてもよい。

《結着樹脂》上記各成分を分散させるための結着樹脂 は、従来より感光層に使用されている種々の樹脂を使用 することができる。例えばスチレンーブタジエン共重合 体、スチレンーアクリロニトリル共重合体、スチレンー マレイン酸共重合体、アクリル共重合体、スチレンーア クリル酸共重合体、ポリエチレン、エチレン一酢酸ビニ ル共重合体、塩素化ポリエチレン、ポリ塩化ビニル、ポ リプロピレン、アイオノマー、塩化ビニルー酢酸ビニル 共重合体、ポリエステル、アルキド樹脂、ポリアミド、 ポリウレタン、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポ リスルホン、ジアリルフタレート樹脂、ケトン樹脂、ポ リビニルブチラール樹脂、ポリエーテル樹脂、ポリエス テル樹脂等の熱可塑性樹脂;シリコーン樹脂、エポキシ 樹脂、フェノール樹脂、尿素樹脂、メラミン樹脂、その 他架橋性の熱硬化性樹脂;エポキシアクリレート、ウレ タンーアクリレート等の光硬化型樹脂等の樹脂が使用可 能である。

【0164】感光層には、上記各成分のほかに、電子写真特性に悪影響を与えない範囲で、従来公知の種々の添加剤、例えば酸化防止剤、ラジカル捕捉剤、一重項クエンチャー、紫外線吸収剤等の劣化防止剤、軟化剤、可塑剤、表面改質剤、増量剤、増粘剤、分散安定剤、ワックス、アクセプター、ドナー等を配合することができる。また、感光層の感度を向上させるために、例えばテルフェニル、ハロナフトキノン類、アセナフチレン等の公知

の増感剤を電荷発生剤と併用してもよい。

【0165】本発明の単層型感光体において、電荷発生剤は、結着樹脂100重量部に対して0.1~50重量部、好ましくは0.5~30重量部の割合で配合すればよい。本発明のスチルベン誘導体(1)(正孔輸送剤)は、結着樹脂100重量部に対して20~500重量部、好ましくは30~200重量部の割合で配合すればよい。電子輸送剤の割合は、結着樹脂100重量部に対して5~100重量部、好ましくは10~80重量部とするのが適当である。また、単層型感光体における感光 10層の厚さは5~100μm、好ましくは10~50μmである。

【0166】本発明の単層型感光体においては、導電性基体と感光層との間に、感光体の特性を阻害しない範囲でバリア層が形成されていてもよい。また、感光体の表面には、保護層が形成されていてもよい。上記感光層が形成される導電性基体としては、導電性を有する種々の材料を使用することができ、例えば鉄、アルミニウム、銅、スズ、白金、銀、バナジウム、モリブデン、クロム、カドミウム、チタン、ニッケル、パラジウム、インジウム、ステンレス鋼、真鍮等の金属単体や、上記金属が蒸着またはラミネートされたプラスチック材料、ヨウ化アルミニウム、酸化スズ、酸化インジウム等で被覆されたガラス等があげられる。

【0167】導電性基体の形状は、使用する画像形成装置の構造に合わせて、シート状、ドラム状等のいずれであってもよく、基体自体が導電性を有するか、あるいは基体の表面が導電性を有していればよい。また、導電性基体は、使用に際して十分な機械的強度を有するものが好ましい。前記感光層を塗布の方法により形成する場合には、前記例示の電荷発生剤、電荷輸送剤、結着樹脂等を適当な溶剤とともに、公知の方法、例えばロールミル、ボールミル、アトライタ、ペイントシェーカーあるいは超音波分散機等を用いて分散混合して分散液を調整し、これを公知の手段により塗布して乾燥させればよい。

【0168】上記分散液を作るための溶剤としては、種々の有機溶剤が使用可能であり、例えばメタノール、エタノール、イソプロパノール、ブタノール等のアルコール類;nーヘキサン、オクタン、シクロヘキサン等の脂肪族系炭化水素:ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族系炭化水素、ジクロロメタン、ジクロロエタン、クロロホルム、四塩化炭素、クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素;ジメチルエーテル、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、エチレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールジメチルエーテル類;アセトン、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン類;酢酸エチル、酢酸メチルなどのエステル類;ジメチルホルムアルデヒド、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド等があげられる。これらの溶 50

剤は単独でまたは2種以上を混合して用いられる。

【0169】さらに、電荷輸送剤や電荷発生剤の分散性、感光層表面の平滑性を良くするために界面活性剤、レベリング剤等を使用してもよい。

[0170]

【実施例】以下、本発明を合成例、実施例および比較例 に基づいて説明する。

《スチルベン誘導体の合成》

参考例1 (4-イソプロピルトリフェニルアミンの合成)

4ーイソプロピルアニリン19.4g(143ミリモル)、ヨードベンゼン60g(294ミリモル)、無水炭酸カリウム20g(145ミリモル)および粉末銅1g(16ミリモル)をニトロベンゼン150ミリリットル中に加え、還流下、約24時間反応させた。反応後、無機塩を除去し、溶媒を留去した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/ヘキサン混合溶媒)で精製して、標記化合物29.2gを得た(収率71%)。

【0171】参考例2(4-イソプロピル-4'-ホルミルトリフェニルアミンの合成)

4ーイソプロピルトリフェニルアミン28g(97ミリモル)をジメチルホルムアミド(DMF)300ミリリットルに溶解し、オキシ塩化リン酸15g(98ミリモル)を加えて40℃で1時間反応させた。反応後、水300ミリリットル中に加え、酢酸エチルで抽出した。次いで、有機層を水洗乾燥して溶媒を留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィ(展開溶媒:クロロホルム/ヘキサン混合溶媒)で精製して、標記化合物26.7g(収率87%)を得た。

【0172】参考例3(3,4-ジメチルトリフェニルアミンの合成)

4 ーイソプロピルアニリンに代えて3,4 ーキシリジン17.4g(144ミリモル)を用いたほかは、参考例1と同様にして反応、精製を行い、標記化合物29.4gを得た(収率75%)。

参考例 4 (3, 4 - ジメチルー 4' - ホルミルトリフェニルアミンの合成)

4-イソプロピルトリフェニルアミンに代えて3, 4-ジメチルトリフェニルアミンを用いたほかは、参考例2と同様にして反応、精製を行い、標記化合物25.2gを得た(収率88%)。

【0173】参考例5(3,3'-ジメチル-4''-エチルトリフェニルアミンの合成)

4- イソプロピルアニリンに代えて p- エチルアニリン 17.4g(144ミリモル)を用い、ヨードベンゼン に代えて<math>m-ヨードトルエン64g(294ミリモル)を用いたほかは、参考例 1と同様にして反応、精製を行い、標記化合物 29.4gを得た(収率 68%)。

【0174】参考例6(3,3'ージメチルー4''ー

エチルー4ーホルミルトリフェニルアミンの合成) 4ーイソプロピルトリフェニルアミンに代えて3,3'ージメチルー4''ーエチルトリフェニルアミンを用いたほかは、参考例2と同様にして反応、精製を行い、標記化合物29.4gを得た(収率93%)。

【0175】参考例7(ビスリン酸エステルの合成) リン酸トリエチルと p ーキシリレンジクロライドとか ら、下記式(94p) で表されるビスリン酸エステル誘導体 を得た。さらに、リン酸トリエチルとmーキシリレンジ クロライドとから、下記式(94m) で表されるビスリン酸 10 エステル誘導体を得た。

[0176]

【化64】

$$(C_2H_5O)_2P-CH_2-CH_2-P(OC_2H_5)_2$$
(94m)

【0177】合成例1 (スチルベン誘導体(11-9)の合成)

上記式(94p) で表されるビスリン酸エステル5g(13.2ミリミル)と脱気乾燥した水素化ナトリウム1.1g(27.5ミリモル)とをテトラヒドロフラン250ミリリットル中に加え、氷冷した。これに、テトラヒドロフラン50ミリリットルに溶解した4ーイソプロピルー4'ーホルミルトリフェニルアミン8.4g(26.6ミリモル)を滴下し、室温で約3時間反応させた。反応後、約2%の希塩酸水溶液400ミリリットルに加え、析出した結晶をろ過し、水洗した。結晶を乾燥後、シリカゲルカラムクロマトグラフィ(展開溶媒:クロホルム/ヘキサン混合溶媒)で精製して、前記表1において化合物番号11-9で示したスチルベン誘導体6.6gを得た(収率71%)。

【0178】融点:120~122℃

上記スチルベン誘導体(11-9)の「H-NMRスペクトルを図1に、赤外線吸収スペクトルを図2に示す。

合成例2 (スチルベン誘導体(12-9)の合成)

上記式(94p) で表されるビスリン酸エステルに代えて、上記式(94m) で表されるビスリン酸エステル5gを用いたほかは、合成例1と同様にして反応、精製を行い、前記表1において化合物番号12-9で示したスチルベン誘導体5.4gを得た(収率58%)。

【0179】融点:94~96℃

上記スチルベン誘導体(12-9)の「H-NMRスペクトルを図3に、赤外線吸収スペクトルを図4に示す。

合成例3 (スチルベン誘導体(11-17) の合成)

4ーイソプロピルー4'ーホルミルトリフェニルアミンに代えて、3,4ージメチルー4'ーホルミルトリフェニルアミン8g(26.5ミリモル)を用いたほかは、合成例1と同様にして反応、精製を行い、前記表2において化合物番号11-17で示したスチルベン誘導体6.7gを得た(収率75%)。

【0180】融点:195~197℃

上記スチルベン誘導体(11-17) の「H-NMRスペクトルを図5に、赤外線吸収スペクトルを図6に示す。

合成例4 (スチルベン誘導体(12-17) の合成)

上記式 (94p) で表されるビスリン酸エステルに代えて、上記式 (94m) で表されるビスリン酸エステル 5 g を用いたほかは、合成例 3 と同様にして反応、精製を行い、前記表 2 において化合物番号 1 2 - 1 7 で示したスチルベン誘導体 4 . 6 g を得た(収率 5 2 %)。

【0181】融点:88~90℃

上記スチルベン誘導体(12-17) の H-NMRスペクトルを図7に、赤外線吸収スペクトルを図8に示す。 合成例5 (スチルベン誘導体(11-8)の合成)

4-イソプロピルー4'ーホルミルトリフェニルアミンに代えて、4-エチルー3',3''ージメチルー4'ーホルミルトリフェニルアミン8.7g(26.4ミリモル)を用いたほかは、合成例1と同様にして反応、精製を行い、前記表1において化合物番号11-8で示したスチルベン誘導体6.5gを得た(収率68%)。

【0182】融点:194~196℃

上記スチルベン誘導体(11-8)の「H-NMRスペクトルを図9に、赤外線吸収スペクトルを図10に示す。 合成例6(スチルベン誘導体(12-8)の合成)

上記式(94p) で表されるビスリン酸エステルに代えて、 上記式(94m) で表されるビスリン酸エステル5gを用いたほかは、合成例5と同様にして反応、精製を行い、前記表1において化合物番号12-8で示したスチルベン誘導体5.2gを得た(収率54%)。

【0183】融点:94~96℃

上記スチルベン誘導体(12-8)の「H-NMRスペクトルを図11に、赤外線吸収スペクトルを図12に示す。 合成例7(スチルベン誘導体(12-1)の合成)

4-イソプロピルー4'ーホルミルトリフェニルアミン に代えて、4-メチルー4'ーホルミルトリフェニルアミン7.6g(26.4ミリモル)を用いたほかは、合成例2と同様にして反応、精製を行い、前記表1において化合物番号12-1で示したスチルベン誘導体7.0gを得た(収率82%)。

【0184】融点:196~198℃

《電子写真感光体の製造》

(デジタル光源用単層型感光体)

実施例1

電荷発生剤にはX型無金属フタロシアニン(CG1-1)を用 いた。正孔輸送剤には、前記表1の化合物番号12-1

で表されるスチルベン誘導体を用いた。電子輸送剤に は、式(2-1):

[0185]

[(£ 6 5]  

$$H_3C$$
 $C(CH_3)_3$ 
 $C(CH_3)_3$ 
 $C(CH_3)_3$ 

【0186】で表されるジフェノキノン誘導体を用いた。上記電荷発生剤5重量部、正孔輸送剤100重量部、電子輸送剤30重量部および結着樹脂(ポリカーボネート)100重量部を溶媒(テトラヒドロフラン)800重量部とともにボールミルにて50時間混合分散させて、単層型感光層用の塗布液を作製した。次いでこの塗布液を導電性基材(アルミニウム素管)上にディップコート法にて塗布し、100℃で30分間熱風乾燥して、膜厚25μmの単層型感光層を有するデジタル光源用の単層型感光体を製造した。

#### 【0187】実施例2

正孔輸送剤として、前記表1の化合物番号12-8で表されるスチルベン誘導体を用いたほかは、実施例1と同様にしてデジタル光源用の単層型感光体を製造した。 実施例3

正孔輸送剤として、前記表1の化合物番号11-9で表されるスチルベン誘導体を用いたほかは、実施例1と同様にしてデジタル光源用の単層型感光体を製造した。

#### 【0188】実施例4

正孔輸送剤として、前記表1の化合物番号12-17で 表されるスチルベン誘導体を用いたほかは、実施例1と 30 同様にしてデジタル光源用の単層型感光体を製造した。 実施例5

正孔輸送剤として、前記表1の化合物番号11-17で 表されるスチルベン誘導体を用いたほかは、実施例1と 同様にしてデジタル光源用の単層型感光体を製造した。

【0189】実施例6~10

電子輸送剤として、式(3-1):

[0190]

【化66】

【0191】で表されるナフトキノン誘導体を用いたほかは、実施例1~5と同様にしてデジタル光源用の単層

型感光体を製造した。

実施例11~13

電子輸送剤として、式(3-2):

[0192]

【化67】

48

【0193】で表されるナフトキノン誘導体を用いたほかは、実施例1~3と同様にしてデジタル光源用の単層型感光体を製造した。

実施例14~16

電子輸送剤として、式(4-1):

[0194]

【化68】

【0195】で表されるジアザナフト [2,3-b]フルオレン誘導体を用いたほかは、実施例1~3と同様にしてデジタル光源用の単層型感光体を製造した。

比較例 1

正孔輸送剤として、式(6-1):

[0196]

【0197】で表されるスチルベン誘導体を用いたほかは、実施例1と同様にしてデジタル光源用の単層型感光体を製造した。

比較例2

正孔輸送剤として、式(6-2):

[0198]

【化70】

$$(H_3C)_2HC \longrightarrow CH+CH \longrightarrow CH+CH \longrightarrow CH(CH_3)_2$$
 
$$(H_3C)_2HC \longrightarrow (6-2)$$
 
$$CH(CH_3)_2$$

【0199】で表されるスチルベン誘導体を用いたほかは、実施例1と同様にしてデジタル光源用の単層型感光体を製造した。

比較例3

正孔輸送剤として、式(6-3):

[0200]

【0201】で表されるスチルベン誘導体を用いたほかは、実施例1と同様にしてデジタル光源用の単層型感光体を製造した。上記実施例1~16 および比較例1~3で得られた感光体について下記の電気特性試験(I)を行い、各感光体の電気特性を評価した。

電気特性試験(I)

ジェンテック(GENTEC)社製のドラム感度試験機を用いて各感光体の表面に印加電圧を加え、その表面を+700 $\pm20$ Vに帯電させた後、表面電位 V。(V)を測定した。次いで、露光光源であるハロゲンランプの白色光からバンドパスフィルタを用いて取り出した波長 780nmの単色光(半値幅 20nm、光強度  $8\mu$  J/cm²)を感光体の表面に照射(照射時間 1.5秒)して、上記表面電位 V。が 1/2になるのに要した時間を測定し、半減露光量  $E_{1/2}$  ( $\mu$  J/cm²)を算出した。また、露光開始から 0.5 秒経過した時点での表面電位を残留電位 Vr(V)として測定した。

50

【0202】上記各実施例および比較例で使用した電荷発生剤、正孔輸送剤および電子輸送剤の種類と、電気特性の試験結果とを表5に示す。なお、以下の表において、電荷発生剤、正孔輸送剤および電子輸送剤の種類はそれぞれの式番号または化合物に付した番号で示した。 【0203】

【表5】

	電荷発生剤	正孔	電子輸送剤	V <sub>o</sub>	v <sub>r</sub>	E <sub>1/2</sub>
実施例 1	OG 1 -1	12-1	2-1	703	9 7	0. 68
実施例 2	CG 1 -1	12-8	2-1	698	110	0.66
実施例 3	CG 1 -1	11-9	2 – 1	704	97	0.66
実施例 4	CG 1 -1	12-17	2-1	689	98	0.67
実施例 5	CG 1 -1	11-17	2-1	697	96	0.65
実施例 6	CG 1 -1	12-1	3 1	701	98	0.67
実施例 7	CG 1-1	12-8	3 – 1	705	110	0.64
実施例 8	CG 1-1	11 – 9	3 – 1	697	94	0.64
実施例 9	CC 1 -1	12-17	3 – 1	697	99	0.69
実施例10	CG 1-1	11-17	3 – 1	703	95	0.65
実施例11	CG 1-1	12- 1	3 - 2	700	9 4	0.66
実施例12	CG 1 -1	12-8	3 - 2	702	110	0.66
実施例13	CG 1 -1	11 – 9	3 - 2	696	97	0.68
実施例14	CG 1-1	12-1	4-1	697	98	0.68
実施例15	CG 1 -1	12-8	4-1	701	112	0.69
実施例 1 6	CG 1-1	11-9	4-1	698	96	0. 64
比較例 1	CC 1 -1	6-1	-	703	163	0. 99
比較例 2	CG 1 -1	6-2	- ]	697	159	1. 09
比較例 3	CG 1 -1	6 – 3	-	701	160	1. 09

#### 【0204】実施例17~21

電荷発生剤として α型オキソチタニルフタロシアニン(C G2-1) を用いたほかは、実施例 1 ~ 5 と同様にしてデジ 50

タル光源用の単層型感光体を製造した。 実施例22~26

電荷発生剤としてα型オキソチタニルフタロシアニン(C

G2-1) を用いたほかは、実施例  $6\sim1$  0 と同様にしてデジタル光源用の単層型感光体を製造した。

#### 【0205】実施例27~29

電荷発生剤として $\alpha$ 型オキソチタニルフタロシアニン(CG2-1)を用いたほかは、実施例 $11\sim13$ と同様にしてデジタル光源用の単層型感光体を製造した。

#### 実施例30~32

電荷発生剤として $\alpha$ 型オキソチタニルフタロシアニン(CG2-1)を用いたほかは、実施例 $14\sim16$ と同様にしてデジタル光源用の単層型感光体を製造した。

【0206】比較例4~6

電荷発生剤として α型オキソチタニルフタロシアニン(C G2-1) を用いたほかは、比較例 1~3と同様にしてデジタル光源用の単層型感光体を製造した。上記実施例 17~32 および比較例 4~6で得られた感光体について前記電気特性試験(I) を行い、各感光体の電気特性を評価した。各実施例および比較例で使用した電荷発生剤、正孔輸送剤および電子輸送剤の種類と、電気特性の試験結果とを表 6 に示す。

[0207]

10 【表6】

	電荷 発生剤	正孔 輸送剤	電子 輸送剤	V <sub>o</sub>	v <sub>r</sub>	E <sub>1/2</sub>
実施例17	CG 2-1	12-1	2-1	701	90	0.65
実施例18	CG 2-1	12-8	2-1	694	110	0.68
実施例19	CG 2-1	11-9	2-1	698	94	0.67
実施例20	CG 2-1	12-17	2-1	698	80	0.70
実施例21	CG 2-1	11-17	2-1	701	93	0.69
実施例22	CG 2-1	12-1	3-1	690	96	0.63
実施例23	CG 2-1	12-8	3 – 1	702	113	0.68
実施例24	CG 2-1	11 – 9	3 – 1	701	94	0. 67
実施例25	CG 2-1	12-17	3 – 1	695	93	0.69
実施例26	CG 2-1	11-17	3-1	705	9 2	0.65
実施例27	CG 2-1	12-1	3-2	691	95	0.63
実施例28	OG 2-1	12-8	3-2	699	110	0.64
実施例29	CG 2-1	11 – 9	3-2	700	9 2	0.67
実施例30	CG 2-1	12-1	4 – 1	705	98	0.66
実施例31	CG 2-1	12-8	4-1	697	105	0.68
実施例32	CG 2-1	11 – 9	4 – 1	700	98	0.69
比較例 4	CG 2-1	6-1	_	702	150	1.01
比較例 5	CG 2-1	6-2		702	148	1.10
比較例 6	CG 2-1	6 - 3		705	149	1.08

#### 【0208】実施例33~37

電荷発生剤としてY型オキソチタニルフタロシアニン(C G2-2) を用いたほかは、実施例1~5と同様にしてデジタル光源用の単層型感光体を製造した。

#### 実施例38~42

電荷発生剤としてY型オキソチタニルフタロシアニン(C G2-2) を用いたほかは、実施例6~10と同様にしてデ 40 ジタル光源用の単層型感光体を製造した。

#### 【0209】実施例43~45

電荷発生剤として Y 型オキソチタニルフタロシアニン (C G2-2) を用いたほかは、実施例  $11\sim13$  と同様にしてデジタル光源用の単層型感光体を製造した。

#### 実施例46~48

電荷発生剤としてY型オキソチタニルフタロシアニン(C

G2-2) を用いたほかは、実施例 1 4~1 6 と同様にして デジタル光源用の単層型感光体を製造した。

#### 【0210】比較例7~9

電荷発生剤としてY型オキソチタニルフタロシアニン(CG2-2)を用いたほかは、比較例 I ~ 3と同様にしてデジタル光源用の単層型感光体を製造した。上記実施例 3 3 ~ 4 8 および比較例 7 ~ 9 で得られた感光体について前記電気特性試験(I)を行い、各感光体の電気特性を評価した。各実施例および比較例で使用した電荷発生剤、正孔輸送剤および電子輸送剤の種類と、電気特性の試験結果とを表 7 に示す。

[0211]

【表7】

	電荷 発生剤	正孔 輸送剤	電子 輸送剤	v <sub>o</sub>	v <sub>r</sub>	E <sub>1/2</sub>
実施例33	CG 2-2	12-1	2-1	698	9 1	0. 61
実施例34	CG 2-2	12-8	2-1	700	110	0.63
実施例35	CG 2-2	11 – 9	2-1	697	8 9	0.64
実施例36	CG 2-2	12-17	2-1	697	9 2	0.65
実施例37	CG 2-2	11-17	2-1	701	9 1	0.63
実施例38	CG 2-2	12-1	3-1	699	90	0.66
実施例39	CG 2-2	12-8	3-1	700	108	0.63
実施例40	CG 2-2	11 – 9	3 - 1	700	91	0.67
実施例41	062-2	12-17	3-1	702	8 9	0.65
実施例42	CG 2-2	11-17	3-1	703	90	0.61
実施例43	CG 2-2	12-1	3 – 2	703	8 8	0.62
実施例44	CG 2-2	12-8	3 - 2	697	111	0.63
実施例45	CG 2-2	11 – 9	3 - 2	689	93	0.62
実施例46	CG 2-2	12-1	4-1	693	9 0	0.60
実施例47	CG 2-2	12-8	4 - 1	695	105	0.61
実施例48	CG 2-2	11-9	4 – 1	700	90	0.62
比較例 7	OG 2-2	6-1	_	699	161	1. 09
比較例 8	CG 2-2	6-2	_	700	159	1. 10
比較例 9	CG 2-2	6-3		701	157	1. 13

#### 【0212】 (アナログ光源用単層型感光体)

実施例49~53

電荷発生剤として、式(CG3-1):

[0213]

(CG3-1)

【0214】で表されるペリレン顔料を用いたほかは、 実施例1~5と同様にしてアナログ光源用の単層型感光 体を製造した。

実施例54~58

電荷発生剤としてペリレン顔料(CG3-1) を用いたほかは、実施例6~10と同様にしてアナログ光源用の単層型感光体を製造した。

【0215】実施例59~61

電荷発生剤としてペリレン顔料(CG3-1) を用いたほかは、実施例11~13と同様にしてアナログ光源用の単

層型感光体を製造した。

実施例62~64

電荷発生剤としてペリレン顔料(CG3-1) を用いたほかは、実施例  $1.4 \sim 1.6$  と同様にしてアナログ光源用の単層型感光体を製造した。

【0216】比較例10~12

電荷発生剤としてペリレン顔料(CG3-1)を用いたほかは、比較例1~3と同様にしてアナログ光源用の単層型感光体を製造した。上記実施例49~64および比較例10~12で得られた感光体について下記の電気特性試験(II)を行い、各感光体の電気特性を評価した。

#### 【0217】電気特性試験(II)

露光光源としてハロゲンランプの白色光(光強度 8 ルックス)を用いたほかは、前記電気特性試験(I) と同様にして、表面電位 V。(V)、残留電位 Vr (V)および半減露光量 E 1/2 ( l u x・秒)を求めた。上記各実施例および比較例で使用した電荷発生剤、正孔輸送剤および電子輸送剤の種類と、電気特性の試験結果とを表 8 に示す。

[0218]

【表8】

	電荷 発生剤	正孔 輸送剤	電子輸送剤	v <sub>o</sub>	v <sub>r</sub>	E <sub>1/2</sub>
実施例49	CG 3-1	12-1	2-1	700	198	1. 56
実施例50	CG 3-1	12-8	2-1	698	212	1, 54
実施例51	CG 3-1	11-9	2-1	713	189	1. 53
実施例52	CG 3-1	12-17	2-1	703	181	1.53
実施例 5 3	CG 8-1	11-17	2-1	705	178	1.50
実施例 5 4	CG 8-1	12-1	3 – 1	709	183	1. 55
実施例55	CG 3-1	12-8	3-1	713	199	1.49
実施例56	CG 3~1	11-9	3 – 1	709	177	1.48
実施例 5 7	CG 3 -1	12-17	3-1	711	186	1.56
実施例58	CG 3-1	11-17	3-1	701-	173	1.45
実施例59	CG 3-1	12-1	3-2	706	182	1. 53
実施例60	CC 3-1	12-8	3-2	707	201	1. 53
実施例 6 1	CG 3-1	11-9	3-2	709	179	1.54
実施例62	CG 3-1	12-1	4 – 1	703	170	1. 48
実施例 6 3	CG 3 -1	12-8	4 – 1	709	195	1. 43
実施例 6 4	CG 3-1	11 – 9	4-1	699	181	1. 55
比較例10	CG 3-1	6 – 1	-	705	252	1.82
比較例11	CG 3-1	6 – 2	_	701	248	1.81
比較例12	CG 3-1	6 - 3	_	711	250	1.83

【0219】実施例65~69

電荷発生剤として、式(CG4-1):

[0220]

【0221】で表されるビスアゾ顔料を用いたほかは、 実施例49~53と同様にしてアナログ光源用の単層型 感光体を製造した。

実施例70~74

電荷発生剤としてビスアゾ顔料(CG4-1) を用いたほかは、実施例  $5.4 \sim 5.8$  と同様にしてアナログ光源用の単 40 層型感光体を製造した。

【0222】実施例75~77

電荷発生剤としてビスアゾ顔料(CG4-1) を用いたほかは、実施例59~61と同様にしてアナログ光源用の単層型感光体を製造した。

実施例78~80

電荷発生剤としてビスアゾ顔料(CG4-1)を用いたほかは、実施例62~64と同様にしてアナログ光源用の単層型感光体を製造した。

【0223】比較例13~15

電荷発生剤としてビスアゾ顔料(CG4-1)を用いたほかは、比較例 I 0~1 2と同様にしてアナログ光源用の単層型感光体を製造した。上記実施例 6 5~8 0 および比較例 I 3~1 5で得られた感光体について前記電気特性試験(II)を行い、各感光体の電気特性を評価した。各実施例および比較例で使用した電荷発生剤、正孔輸送剤および電子輸送剤の種類と、電気特性の試験結果とを表りに示す。

[0224]

【表9】

	電荷 発生剤	正孔 輸送剤	電子 輸送剤	v <sub>o</sub>	V <sub>r</sub>	E <sub>1/2</sub>
実施例 6 5	CG 4-1	12-1	2-1	709	151	1. 32
実施例66	CG 4-1	12-8	2-1	711	179	1. 33
実施例 6 7	CG 4-1	11 – 9	2-1	7.0 3	150	1. 32
実施例68	CG 4 -1	12-17	2-1	701	149	1. 32
実施例69	CG 4-1	11-17	2-1	693	147	1. 34
実施例70	CG 4 -1	12-1	3 – 1	705	139	1. 29
実施例71	CG 4 -1	12-8	3-1	702	172	1. 33
実施例72	CG 4-1	11 – 9	3 – 1	713	148	1. 32
実施例73	CG 4-1	12-17	3 – 1	707	140	1. 29
実施例74	CG 4-1	11-17	3-1	701	139	1. 28
実施例75	CG 4 -1	12-1	3 - 2	709	142	1.30
実施例76	CG 4-1	12-8	3 – 2	714	165	1. 29
実施例77	CG 4 -1	11 - 9	3 - 2	708	139	1. 28
実施例78	CG 4 - 1	12-1	4 – 1	711	148	1. 32
実施例79	CG 4-1	12-8	4 - 1	695	165	1. 31
実施例80	CG 4 -1	11-9	4-1	704	149	1. 32
比較例13	CG 4-1	6-1	-	701	221	1. 75
比較例14	CG 4 -1	6-2	-	705	219	1.74
<b>比較例15</b>	CG 4 -1	6 - 3	-	712	220	1.75

【0225】実施例81~85 電荷発生剤として、式(CG4-2):

[0226] 【化74】

(CG4-2)

【0227】で表されるビスアゾ顔料を用いたほかは、 実施例49~53と同様にしてアナログ光源用の単層型 感光体を製造した。

実施例86~90

電荷発生剤としてビスアゾ顔料(CG4-2) を用いたほかは、実施例54~58と同様にしてアナログ光源用の単 40層型感光体を製造した。

【0228】実施例91~93

電荷発生剤としてビスアゾ顔料(CG4-2) を用いたほかは、実施例59~61と同様にしてアナログ光源用の単層型感光体を製造した。

実施例94~96

電荷発生剤としてビスアゾ顔料(CG4-2) を用いたほかは、実施例62~64と同様にしてアナログ光源用の単層型感光体を製造した。

【0229】比較例16~18

電荷発生剤としてビスアゾ顔料(CG4-2) を用いたほかは、比較例 10~12と同様にしてアナログ光源用の単層型感光体を製造した。上記実施例 81~96 および比較例 16~18で得られた感光体について前記電気特性試験(II)を行い、各感光体の電気特性を評価した。各実施例および比較例で使用した電荷発生剤、正孔輸送剤および電子輸送剤の種類と、電気特性の試験結果とを表10に示す。

[0230]

【表10】

	電荷 発生剤	正孔 輸送剤	電子 輸送剂	v <sub>o</sub>	v <sub>r</sub>	E <sub>1/2</sub>
実施例81	CG 4-2	12-1	2-1	703	173	1. 48
実施例82	CG 4-2	12-8	2-1	705	189	1. 47
実施例83	CG 4 -2	11 – 9	2-1	700	175	1. 49
実施例84	CG 4 ~2	12-17	2-1	701	168	1. 47
実施例85	CG 4-2	11-17	2-1	707	175	1. 49
実施例86	CG 4-2	12-1	3-1	709	162	1. 41
実施例87	CG 4-2	12-8	3-1	711	170	1. 33
実施例88	CG 4 -2	11-9	3-1	708	155	1. 34
実施例89	CG 4-2	12-17	3-1	695	164	1. 45
実施例90	CG 4-2	11-17	3-1	709	159	1. 41
実施例 9 1	CG 4 -2	12-1	3 – 2	693	142	1. 29
実施例92	CG 4-2	12-8	3 – 2	699	169	1. 30
実施例93	CG 4 -2	11-9	3 - 2	712	158	1. 35
実施例94	CG 4 -2	12-1	4-1	713	159	1.36
実施例95	CG 4 -2	12-8	4-1	703	169	1.30
実施例96	CG 4 -2	11-9	4-1	705	148	1. 31
比較例16	CG 4 -2	6 – 1	-	709	232	1. 79
<b>比較例17</b>	CG 4-2	6-2	-	708	241	1.82
比較例18	CG 4-2	6 – 3		700	239	1.80

【0231】実施例97~101

電荷発生剤として、式(CG4-3):

[0232]

30

【0233】で表されるビスアゾ顔料を用いたほかは、 実施例49~53と同様にしてアナログ光源用の単層型 感光体を製造した。

実施例102~106

電荷発生剤としてビスアゾ顔料(CG4-3) を用いたほかは、実施例54~58と同様にしてアナログ光源用の単層型感光体を製造した。

【0234】実施例107~109

電荷発生剤としてビスアゾ顔料(CG4-3) を用いたほかは、実施例  $5.9 \sim 6.1$  と同様にしてアナログ光源用の単 40 層型感光体を製造した。

実施例110~112

電荷発生剤としてビスアゾ顔料(CG4-3) を用いたほか

は、実施例62~64と同様にしてアナログ光源用の単 層型感光体を製造した。

【0235】比較例19~21

電荷発生剤としてビスアゾ顔料(CG4-3)を用いたほかは、比較例10~12と同様にしてアナログ光源用の単層型感光体を製造した。上記実施例97~112および比較例19~21で得られた感光体について前記電気特性試験(II)を行い、各感光体の電気特性を評価した。各実施例および比較例で使用した電荷発生剤、正孔輸送剤および電子輸送剤の種類と、電気特性の試験結果とを表11に示す。

[0236]

【表11】

	電荷	正孔	電子	v	v	F
	発生剤	輸送剤	輸送剤	0	r	E <sub>1/2</sub>
実施例 9 7	CG 4-8	12-1	2-1	702	185	1. 51
実施例 9 8	CG 4-3	12-8	2 - 1	713	201	1. 49
実施例99	CG 4-3	11-9	2-1	709	179	1. 48
実施例 100	CG 4 -3	12-17	2-1	707	188	1. 51
実施例 101	CG 4 -3	11-17	2-1	700	181	1. 49
実施例 102	CG 4 -3	12-1	3 - 1	701	189	1. 52
実施例 103	CG 4 -3	12-8	3 – 1	703	219	1. 55
実施例 104	CG 4 -3	11-9	3 - 1	712	189	1. 54
実施例 105	CC 4-3	12-17	3 – 1	715	183	1. 49
実施例 106	CG 4 -3	11-17	3 – 1	698	181	1.48
実施例 107	CG 4-3	12-1	3 – 2	699	172	1. 45
実施例 108	CG 4 -3	12-8	3 - 2	712	199	1. 48
実施例 109	CG 4 -3	11-9	3-2	715	183	1.49
実施例 110	CG 4 -3	12-1	4-1	708	191	1. 53
実施例 111	CG 4 -3	12-8	4-1	707	200	1.53
実施例 112	CG 4 -3	11-9	4-1	709	188	1. 52
比较例19	CG 4 -3	6-1	-	701	241	1. 79
<b>比較例20</b>	CG 4-3	6-2	-	705	242	1. 73
比較例21	CG 4 -3	6 – 3		699	255	1. 81

【0237】表5~11から明らかなように、正孔輸送剤として一般式(1)で表されるスチルベン誘導体を用いた実施例1~112の電子写真感光体は、各実施例に対応する比較例の感光体に比べて残留電位 $V_r$ が大きく低下している。また、半減露光量 $E_{1/2}$ についても、対応する比較例での値を下回っている。すなわち、実施例1~112の感光体は、優れた感度を有していることが分かる。

#### [0238]

【発明の効果】以上詳述したように、本発明の電子写真感光体は、上記一般式(1)で表されるスチルベン誘導体と、電子輸送剤とを用いたことから、高感度である。また、単層型感光体であることから、単独の構成で正負いずれの帯電型にも適用可能で、光学的特性に優れている等の利点を有する。

【0239】従って、本発明の電子写真感光体は、静電式複写機やレーザービームプリンタ等の各種画像形成装置の高速化、高性能化等に寄与するという特有の作用効 40 果を有する。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】スチルベン誘導体(11-9)の「H-NMRスペクトルを示すグラフである。

【図2】スチルベン誘導体(11-9)の赤外線吸収スペクトルを示すグラフである。

【図3】スチルベン誘導体(12-9)の「H-NMRスペクトルを示すグラフである。

【図4】スチルベン誘導体(12-9)の赤外線吸収スペクトルを示すグラフである。

【図 5 】スチルベン誘導体(11-17) の「H-NMRスペクトルを示すグラフである。

【図6】スチルベン誘導体(11-17) の赤外線吸収スペクトルを示すグラフである。

【図7】スチルベン誘導体(12-17)の「H-NMRスペクトルを示すグラフである。

【図8】スチルベン誘導体(12-17) の赤外線吸収スペクトルを示すグラフである。

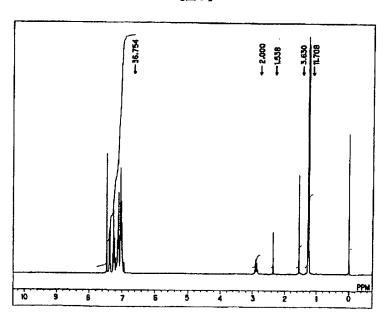
【図9】スチルベン誘導体(11-8)の <sup>1</sup> H - NMRスペクトルを示すグラフである。

【図10】スチルベン誘導体(11-8)の赤外線吸収スペクトルを示すグラフである。

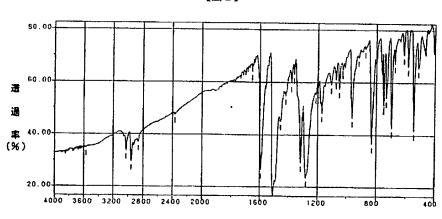
【図11】スチルベン誘導体(12-8)の「H-NMRスペクトルを示すグラフである。

【図12】スチルベン誘導体(12-8)の赤外線吸収スペクトルを示すグラフである。



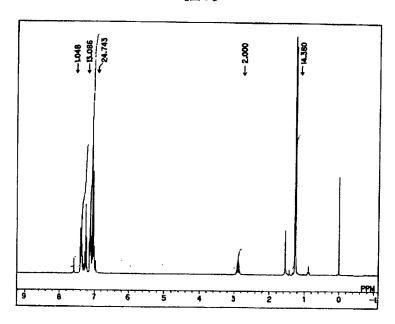




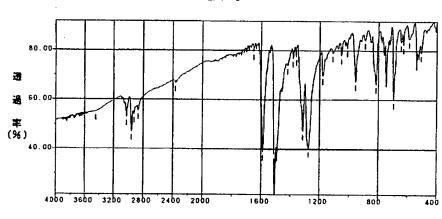


波 数 (cm<sup>-1</sup>)

【図3】

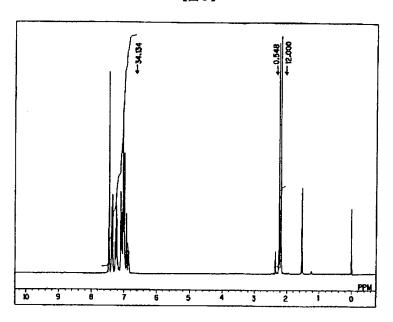




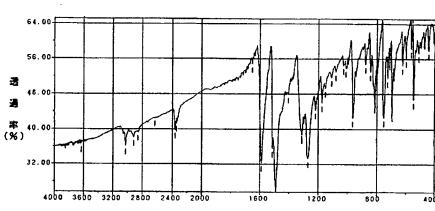


波 数(cm<sup>-</sup>')

【図5】

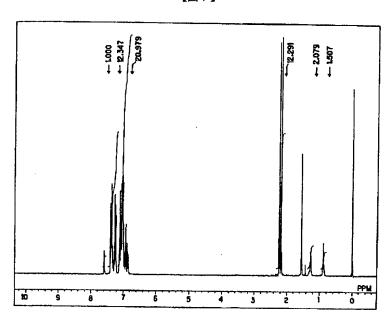


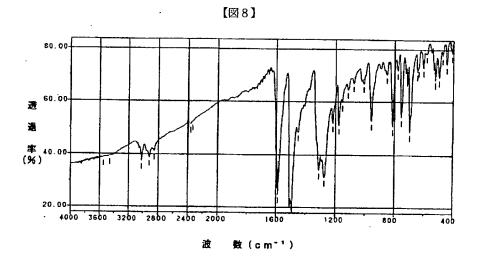




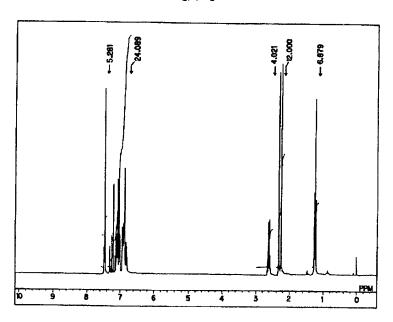
波 数 (cm<sup>-1</sup>)

【図7】

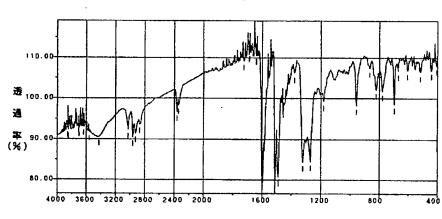




【図9】

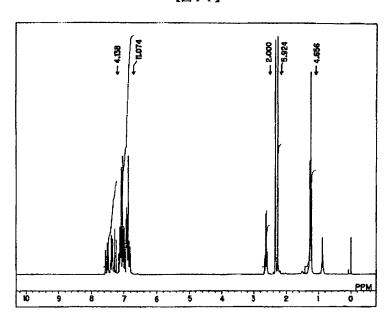




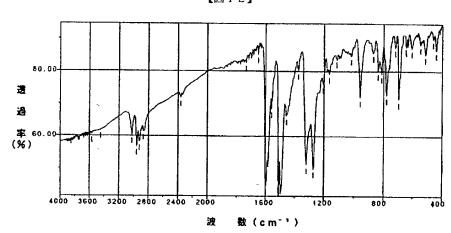


波 数 (cm<sup>-1</sup>)

【図11】



【図12】



#### フロントページの続き

(72)発明者 浜崎 一也 大阪府大阪市中央区玉造1丁目2番28号 三田工業株式会社内

(72)発明者 稲垣 義雄

大阪府大阪市中央区玉造1丁目2番28号

三田工業株式会社内

(72)発明者 屋島 亜矢子

大阪府大阪市中央区玉造1丁目2番28号

三田工業株式会社内

# This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

the images include but are not limited to the items checked:
BLACK BORDERS
☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
FADED TEXT OR DRAWING
☑ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
T orwan

## IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.